

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS


REC'D 07 OCT 2005

WIPO PCT

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts KS 00803 WO-A	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/008896	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 09.08.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 19.08.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08J3/12, B02C23/00, C08K5/00, C08K7/02, C08K7/14		
Anmelder KURARAY SPECIALITIES EUROPE GMBH et al.		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 11 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 17.06.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 06.10.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Zeslawski, W Tel. +49 89 2399-7159	

Best Available Copy

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/008896

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

Beschreibung, Seiten

1, 3-13, 15-17, 19, 20, 23-25, 28-60	in der ursprünglich eingereichten Fassung
2, 2a, 14, 18, 21, 22, 26, 27	eingegangen am 17.06.2005 mit Schreiben vom 17.06.2005

Ansprüche, Nr.

1-6, 7(Teil)	eingegangen am 17.06.2005 mit Schreiben vom 17.06.2005
7(Teil), 8-17	eingegangen am 22.09.2005 mit Schreiben vom 20.09.2005

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/008896

Feld Nr. II Priorität

1. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da folgende angeforderte Unterlagen nicht innerhalb der vorgeschriebenen Frist eingereicht wurden:
 - ☒ Abschrift der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist (Regel 66.7(a)).
 - ☐ Übersetzung der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist (Regel 7(b)).
2. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da sich der Prioritätsanspruch als ungültig erwiesen hat (Regel 64.1). Für die Zwecke dieses Berichts gilt daher das obengenannte internationale Anmeldedatum als das maßgebliche Datum.
3. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
 - Neuheit (N)
 - Ja: Ansprüche 1-7
 - Nein: Ansprüche 8-17
 - Erfinderische Tätigkeit (IS)
 - Ja: Ansprüche 1-7
 - Nein: Ansprüche
 - Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)
 - Ja: Ansprüche: 1-17
 - Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Zu Punkt V.

Im vorliegenden Bescheid wird auf folgende Dokumente verwiesen:

D1: US-A-4 323 492 (ZIMMERMANN WOLFGANG ET AL) 6. April 1982 (1982-04-06)

D2: US-A-4 130 539 (WEGMANN JACQUES E) 19. Dezember 1978 (1978-12-19)

Die Dokumente D3 und D4 wurden im internationalen Recherchenbericht nicht angegeben.

D3: US-A-4 665 124 (JOHN E. WALLS ET AL) 12. Mai 1987 (1987-05-12)

D4: EP-A-0 532 489 (Monsanto Company) 17. March 1993 (1993-03-17)

Neuheit (Art.33(2) PCT)

Jedes dieser Dokumente D1-D4 offenbart jeweils ein Verfahren zur Herstellung eines polyvinylacetalhaltigen Granulates, wobei ein polyvinylacetalhaltiges Granulat aus einer organischen Lösung bzw. Dispersion durch Wasserzugabe ausfällt.

Keines der zitierten Dokumente offenbart ein Verfahren zur Herstellung eines Granulates enthaltend mindestens ein Polyvinylacetal, wie in der vorliegenden Anmeldung beansprucht. Daher ist der Gegenstand der Ansprüche 1-7 neu.

Die Granulate des Anspruchs 8 werden durch ein Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1-7 definiert, was auf der Basis einer "product-by-process" Formulierung erfolgt. Es gibt keinen Beleg, daß die Granulate, die durch ein Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1-7 erhalten werden, tatsächlich ein unterscheidendes Merkmal im Vergleich zu den aus D1-D4 bekannten Polyvinylacetal enthaltenden Granulaten aufweisen (D1: Beispiel 7; D2: Beispiel 1; D3: Beispiele 1-4; D4: Anspruch 1 und Beispiele).

Daher ist der Gegenstand des Anspruchs 8 nicht neu.

Die Ansprüche 9-17 enthalten keine Merkmale, die in Kombination mit den Merkmalen irgendeines Anspruchs, auf den sie sich beziehen, die Erfordernisse des PCT in Bezug auf Neuheit bzw. erfinderische Tätigkeit erfüllen.

Erfinderische Tätigkeit (Art.33(3) PCT)

Für die Analyse der erfinderischen Tätigkeit der Ansprüche 1 bis 7 werden die Dokumente D1-D4 als gleich relevant nächstliegender Stand der Technik angesehen.

Die in D1-D4 offenbarten Verfahren unterscheiden sich von dem anmeldungsgemäßen Verfahren dadurch, daß eine das Polyvinylacetal enthaltende Zusammensetzung in einem Ein- oder Zweischnellenextruder, Mehrwellenknetter; Knetter, Walzwerk und/oder einem Kalendar in den schmelzflüssigen Zustand überführt und entsprechend der gewünschten Korngröße granuliert wird.

Dieses unterscheidende Merkmal ist allerdings mit keinem besonderen technischen Effekt verbunden. Die objektive Aufgabenstellung der Erfindung war es somit, ein alternatives Verfahren zur Herstellung von einem polyvinylacetalhaltigen Granulat zur Verfügung zu stellen.

Im vorveröffentlichten Stand der Technik gibt es keinen Vorschlag oder Hinweis darauf, zur Lösung dieser Aufgabe eine das Polyvinylacetal enthaltende Zusammensetzung in einem Ein- oder Zweischnellenextruder, Mehrwellenknetter; Knetter, Walzwerk und/oder einem Kalendar in den schmelzflüssigen Zustand überführen und entsprechend der gewünschten Korngröße granulieren.

Daher scheint der Gegenstand der Ansprüche 1-7 auf erfinderischer Tätigkeit zu beruhen.

Gewerbliche Anwendbarkeit (Art. 33(4) PCT)

Der Gegenstand der vorliegenden Ansprüche ist gewerblich anwendbar (Art. 33(4) PCT).

Ein weiterer Nachteil derartiger Granulate besteht darin, dass sie beim Auflösen zum Verklumpen neigen, welches die Auflösegeschwindigkeit der Granulate merklich verringert. Ferner sind aus technischer Sicht Polyvinylacetal-Granulate mit höherer Schüttdichte wünschenswert.

- 5 Einen ersten Ansatz zur Lösung dieser Probleme liefert die Druckschrift JP 04-258638 A, welche ein Verfahren zur Herstellung eines Polyvinylacetal-Granulats beschreibt, bei welchem man ein Polyvinylacetal-Harz zwischen zwei Rollen bei tiefen Temperaturen verpresst und anschließend auf die gewünschte Korngröße vermahlt. Durch diese Kompaktierung wird ein Granulat mit einer
- 10 vergleichsweise höheren Schüttdichte erhalten, welches jedoch weiterhin einen beträchtlichen Feinanteil aufweist, sodass ein "Stauben" der Granulate weiterhin zu beklagen ist. Auch neigen sie beim Auflösen zum Verklumpen. Des Weiteren ist dieses Verfahren relativ aufwendig und somit teuer. In diesem Zusammenhang ist festzuhalten, dass die freigesetzten Stäube ein sicherheitstechnisches Risiko
- 15 darstellen, sodass Vorrichtungen notwendig sind, diese Stäube abzufangen.

- Die Druckschrift DE-OS 196 50 848 beschreibt ein Recyclingverfahren, wobei Kunststoffe mit einem Polyvinylbutyralgehalt aufgearbeitet werden. Hierbei werden Lamine extrudiert, die den aufbereiteten Kunststoff enthalten. Diese Druckschrift beschreibt jedoch nicht die Herstellung eines Granulats, das
- 20 Polyvinylbutyral enthält.

- ~~In Anbetracht des Standes der Technik war es daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung, Polyvinylacetal-haltige Granulate mit einer höheren Schüttdichte zugänglich zu machen, um auf diese Weise eine weitere Volumenreduzierung der Verpackungseinheit erreichen zu können. Dabei sollten die Polyvinylacetal-~~
- 25 ~~haltigen Granulate gleichzeitig eine erhöhte Auflösegeschwindigkeit in den für Polyvinylacetal gängigen Lösungsmitteln, insbesondere in aliphatischen Alkoholen und Mischungen dieser Komponenten, sowohl bei tiefen als auch bei hohen Temperaturen, aufweisen. Das aus dem Stand der Technik bekannte Verklumpen des Granulats während des Auflösevorgangs sollte bestmöglich~~
- 30 ~~vermieden werden.~~

US 4,323,492 und GB 1221244 betreffen die Herstellung von Polyvinylalkohol-Granulat

bzw.. Partikeln aus einem geschäumten thermoplastischen Polymer aus wässrigen

Dispersionen. Weiterhin ist aus US 4,130,539 die Ausfällung eines polymeren Granulats aus einer organischen Lösung bzw. Dispersion durch Wasserzugabe bekannt. Die Herstellung von

- 5 Granulaten aus Dispersionen oder Lösungen erfordert aufwändige Prozessschritte zur
Bereitung der Dispersion und anschließende Ausfällung und Trocknung des Granulats.

US 5,914,368 offenbart die Herstellung eines Polyvinylacetats aus Polyvinylalkohol und
Stärke durch säurekatalysierte Umsetzung in einem Extruder. Die Granulation eines bereits
10 hergestellten Polyvinylacetats ist dieser Schrift nicht zu entnehmen.

In Anbetracht des Standes der Technik war es daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung,
Polyvinylacetal-haltige Granulate mit einer höheren Schüttdichte zugänglich zu machen, um
auf diese Weise eine weitere Volumenreduzierung der Verpackungseinheit erreichen zu

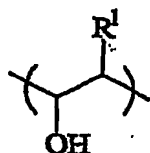
- 15 können. Dabei sollten die Polyvinylacetal-haltigen Granulate gleichzeitig eine erhöhte
Auflösegeschwindigkeit in den für Polyvinylacetal gängigen Lösungsmitteln, insbesondere in
aliphatischen Alkoholen und Mischungen dieser Komponenten, sowohl bei tiefen als auch bei
hohen Temperaturen, aufweisen. Das aus dem Stand der Technik bekannte Verklumpen des
Granulats während des Auflösevorgangs sollte bestmöglich vermieden werden.

80,0 Gew.-%, insbesondere mindestens 90,0 Gew.-%, mindestens eines Polyvinylacetals.

Polyvinylacetale sind in der Fachwelt bekannt. Die erfindungsgemäß eingesetzten Polyvinylacetale werden durch Umsetzung mindestens eines Polymers (A) mit mindestens einer Verbindung (B) erhalten, wobei das Polymer (A) jeweils bezogen auf sein Gesamtgewicht die folgenden Struktureinheiten umfasst:

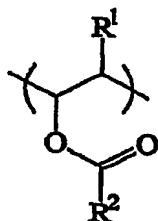
a.) 1,0 bis 100,0 Gew.-%, zweckmäßigerweise 1,0 bis 99,9 Gew.-%

Struktureinheiten der Formel (1)



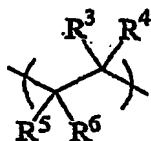
(1)

b.) 0 bis 99,0 Gew.-% Struktureinheiten der Formel (2)



(2)

10 c.) 0 bis 70,0 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 70,0 Gew.-%, insbesondere 1,0 bis 60,0 Gew.-%, Struktureinheiten der Formel (3)



(3)

Dabei sind die jeweiligen Struktureinheiten natürlich voneinander verschieden, insbesondere umfasst im Rahmen der vorliegenden Erfindung die Struktureinheit der Formel (3) nicht die Struktureinheiten der Formel (1) oder (2).

15 Der Rest R¹ stellt jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff oder Methyl, vorzugsweise Wasserstoff, dar.

$\text{H}_2\text{N}(\text{C}_3\text{H}_7)_2^+$, $\text{H}_2\text{N}(\text{C}_4\text{H}_9)_2^+$, $\text{HN}(\text{CH}_3)_3^+$, $\text{HN}(\text{C}_2\text{H}_5)_3^+$, $\text{HN}(\text{C}_3\text{H}_7)_3^+$, $\text{HN}(\text{C}_4\text{H}_9)_3^+$,
 $\text{N}(\text{CH}_3)_4^+$, $\text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)_4^+$, $\text{N}(\text{C}_3\text{H}_7)_4^+$ und $\text{N}(\text{C}_4\text{H}_9)_4^+$.

- Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung ganz besonders bevorzugte Verbindungen (B) umfassen Formaldehyd, Acetaldehyd, Propionaldehyd, n-Butyraldehyd, iso-Butyraldehyd, 2-Ethoxybutyraldehyd, Paraldehyd, 1,3,5-Trioxan, Capronaldehyd, 2-Ethylhexanal, Pelargonaldehyd, 3,5,5-Trimethylhexanal, 2-Formyl-benzoesulfonsäure, Aceton, Ethylmethyleketon, Butylethyleketon und/oder Ethylhexyleketon. Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform wird Glyoxylsäure HCO-COOH als Verbindung (B) verwendet.
- 10 Im Rahmen der vorliegenden Erfindung hat sich der Einsatz von Aldehyden, d. h. von Verbindungen der Formel (4) mit $\text{R}^7 = \text{Wasserstoff}$ und $\text{R}^8 = \text{Wasserstoff}$, eine Methyl-, Ethyl-, n-Propyl- oder eine iso-Propylgruppe, vorzugsweise von Formaldehyd, Acetaldehyd und/oder n-Butyraldehyd, insbesondere von n-Butyraldehyd, ganz besonders bewährt.
- 15 Die Mengen an Verbindung (B) können im Rahmen der vorliegenden Erfindung prinzipiell beliebig gewählt werden. Zweckmäßigerweise werden zwischen 0,1 und 300 Gew.-Teile, vorzugsweise zwischen 25 und 150 Gew.-Teile, zweckmäßigerweise 49 bis 99 Gew.-Teile, insbesondere zwischen 50 und 99 Gew.-Teile, Verbindung (B), jeweils bezogen auf 100 Gew.-Teile Polymer (A),
- 20 eingesetzt.

- Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist das Polyvinylacetal durch ein Verfahren erhältlich, bei dem man mindestens ein Polymer (A) mit mindestens einer Verbindung (B) der Formel (4) und mindestens einem Monosaccharid, mindestens einem Oligosaccharid,
- 25 ~~mindestens einem Polysaccharid~~ oder einer Mischung ~~aus mindestens zwei~~ dieser Komponenten umsetzt, wobei das Monosaccharid, das Oligosaccharid ~~das~~ ~~Polysaccharid~~ bzw. die Mischung, jeweils bezogen auf sein bzw. ihr Gesamtgewicht, mindestens 20 Gew.-% Glucose und/oder Glucoseeinheiten enthält. Diese Polyvinylacetale eignen sich besonders als Bindemittel,

Trehalose (α -D-Glucopyranosyl- α -D-glucopyranosid),
Cellobiose (4-O-(β -D-Glucopyranosyl)-D-glucopyranose),
Gentiobiose (6-O-(β -D-Glucopyranosyl)-D-glucopyranose) und
Melibiose (6-O-(α -D-Galactopyranosyl)-D-glucopyranose)

- 5 sowie die Trisaccharide Raffinose (6-O-(α -D-Galactopyranosyl)- α -D-glucopyranosyl- β -D-fructofuranosid) und Maltotriose (vorzugsweise 4-O-(α -D-Glucopyranosyl)-4-O-(α -D-glucopyranosyl)-D-glucopyranose und/oder 4-O-(β -D-Glucopyranosyl)-4-O-(β -D-glucopyranosyl)-D-glucopyranose).

- Gemäß einer ganz besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden
10 Erfindung werden Disaccharide, insbesondere Maltose, Saccharose und/oder Lactose eingesetzt.

- ~~(Polysaccharide bezeichnen im Sinne der vorliegenden Erfindung Verbindungen, welche durch acetalartige Verknüpfung von mehr als 6 Monosacchariden, vorzugsweise den vorstehend genannten Verbindungen, erhältlich sind. Dabei
15 können die einzelnen Monosaccharide sowohl über die α -Form als auch über die β -Form miteinander verknüpft sein.~~

Zu den erfindungsgemäß besonders geeigneten Polysacchariden gehören u. a. Stärke (Amylum), Amylose, Amylopektin und Cellulose ((1 \rightarrow 4)- β -D-Glucopyranan).

- 20 Stärke ist das Assimilationsprodukt der grünen Pflanzenzellen und besteht im wesentlichen aus ca. 20 Gew.-% Amylose ((1 \rightarrow 4)- α -D-Glucopyranan; 100 bis 1400 Glucose-Einheiten innerhalb einer Kette) und ca. 80 Gew.-% Amylopektin, welches, wie die Amylose, aus D-Glucose-Einheiten besteht, die jedoch in buschartig verzweigten, kürzeren Ketten angeordnet sind, die je 20 bis 25
25 Glucose-Einheiten enthalten. Die Verknüpfung innerhalb der Amylopektin-Kette erfolgt α -(1,4)-glucosidisch, dagegen an den Verzweigungsstellen α -(1,6)-glucosidisch. Seine relative Molekülmasse wird mit 200 000 g/mol bis 1 000 000 g/mol oder höher angegeben.

~~Cellulose bildet als Gerüstsubstanz den Hauptbestandteil der pflanzlichen Zellwände und ist das am häufigsten vorkommende Kohlenhydrat. Sie weist je nach Herkunft üblicherweise ein Molekulargewicht größer 200.000 g/mol auf.~~

Im Rahmen dieser Ausführungsform können auch Mischungen aus mindestens
5 zwei der genannten Komponenten ~~insbesondere Mischungen aus~~
Monosacchariden und Oligosacchariden, Monosacchariden und Polysacchariden,
Oligosacchariden und Polysacchariden oder aus Monosacchariden,
~~Oligosacchariden und Polysacchariden~~ eingesetzt werden.

Das Monosaccharid, das Oligosaccharid ~~das Polysaccharid~~ bzw. die Mischung
10 enthält vorzugsweise, jeweils bezogen auf sein bzw. ihr Gesamtgewicht,
mindestens 20,0 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 50,0 Gew.-%,
zweckmäßigerweise mindestens 60,0 Gew.-%, bevorzugt mindestens 70,0 Gew.-%,
besonders bevorzugt mindestens 80,0 Gew.-%, insbesondere mindestens 90,0
Gew.-%, Glucose und/oder Glucoseeinheiten. Die Art der Verknüpfung der
15 Glucoseeinheiten ist in diesem Zusammenhang prinzipiell unerheblich, sie kann
sowohl über die α -Form als auch über die β -Form erfolgen, obwohl sich eine α -
glucosidische Verknüpfung erfindungsgemäß ganz besonders bewährt hat.

~~Im Rahmen einer ganz besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden~~
~~Erfindung wird eine, vorzugsweise durch saure Katalyse, zumindest teilweise~~
20 ~~hydrolysierte Stärke eingesetzt. Diese weist, bezogen auf ihr Gesamtgewicht,~~
~~vorzugsweise mehr als 70,0 Gew.-%, zweckmäßigerweise mehr als 80,0 Gew.-%,~~
~~bevorzugt mehr als 90,0 Gew.-%, insbesondere zwischen 91,0 und 98,0 Gew.-%,~~
~~Glucose auf.~~

Die Mengen an Monosaccharid, Oligosaccharid und/oder Polysaccharid können
25 prinzipiell beliebig gewählt werden. Zweckmäßigerweise werden zwischen 0,001
und 300 Gew.-Teile, vorzugsweise zwischen 0,01 und 150 Gew.-Teile,
insbesondere zwischen 0,1 und 99 Gew.-Teile, Monosaccharid, Oligosaccharid
~~und/oder Polysaccharid~~, jeweils bezogen auf 100 Gew.-Teile Polymer (A),
eingesetzt.

Sonneneinstrahlung, Sauerstoff, Ozon, weitere gasförmige Bestandteile der Luft, Temperatur, Luftfeuchtigkeit, Niederschläge, Staubablagerungen usw..

Diese verbesserten Langzeiteigenschaften können insbesondere beim Vergleich der Glasübergangstemperatur (vorzugsweise gemessen mittels DSC, Mettler Toledo Star System, Heizrate 10K/min, 2. Heizen), dem Entropieelastizitätsmodul (vorzugsweise gemessen gemäß DIN 7724 (Februar 1972)), der Reißfestigkeit (vorzugsweise gemessen gemäß DIN 53455), der Reißdehnung (vorzugsweise gemessen gemäß DIN 53455), der Wasseraufnahme und/oder der Oberflächenspannung der Polyvinylacetale gemäß dieser Ausführungsform mit herkömmlich extern-plastifizierten Polyvinylacetalen beobachtet werden.

Die Umsetzung der Ausgangsverbindungen (A), (B) sowie gegebenenfalls der Hydroxyverbindung (C) und/oder des Monosaccharids, Oligosaccharids, Polysaccharids oder einer Mischung aus mindestens zwei dieser Komponenten erfolgt vorzugsweise in mindestens einem Lösungsmittel. Ein in diesem Zusammenhang besonders zweckmäßiges Lösungsmittel ist Wasser.

Weiterhin führt man die Reaktion günstigerweise in Gegenwart saurer Katalysatoren durch. Geeignete Säuren umfassen sowohl organische Säuren, wie beispielsweise Essigsäure als auch mineralische Säuren, wie Salzsäure, Schwefelsäure und/oder Salpetersäure, wobei sich der Einsatz von Salzsäure, Schwefelsäure und/oder Salpetersäure in der Technik besonders bewährt hat. Die Durchführung der Reaktion erfolgt vorzugsweise derart, dass man eine Mischung aus den Komponenten (A) und (B) gegebenenfalls der Hydroxyverbindung (C) und/oder dem Monosaccharid, Oligosaccharid und/oder Polysaccharid oder einer Mischung daraus in wässriger Lösung vorlegt und anschließend den sauren Katalysator zutropft. Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung hat es sich auch als günstig erwiesen, eine Mischung aus den Komponenten (A) und (B) in wässriger Lösung vorzulegen, den sauren Katalysator in diese Lösung einzurühren und anschließend das Monosaccharid, Oligosaccharid und/oder Polysaccharid oder einer Mischung daraus zuzugeben. Gemäß einer dritten bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung

hat es sich auch als günstig erwiesen, eine Mischung aus den Komponenten (A) und (B) in wässriger Lösung vorzulegen, den sauren Katalysator in diese Lösung einzuführen und anschließend die Umsetzung durch Zugabe der Verbindung (C) fortzuführen.

- 5 Die Reaktionstemperatur kann man über einen weiten Bereich variieren, aber häufig liegt die Temperatur im Bereich von -20,0 °C bis 100,0 °C, vorzugsweise im Bereich von 0,0 °C bis 80,0 °C. Ähnliches gilt für den Druck, bei dem die Umsetzung vollzogen wird. So kann die Reaktion sowohl bei Unterdruck als auch bei Überdruck stattfinden. Vorzugsweise wird sie aber bei Normaldruck
- 10 durchgeführt.

Alternative Herstellungsweisen der Polymere sind dem Fachmann offensichtlich. So ist es beispielsweise möglich, anstelle der Verbindung (B) Verbindungen einsetzen, die unter den gewählten Reaktionsbedingungen Verbindungen (B) freisetzen. Hierzu gehören u. a. cyclische Trimere von Aldehyden sowie Acetale von Aldehyden oder Ketonen. Weiterhin ist es im Rahmen der ersten bevorzugten Ausführungsform selbstverständlich auch möglich, das Polymer (A) zunächst durch Umsetzung mit einer entsprechenden Menge an Monosaccharid,

- 15 Oligosaccharid und/oder Polysaccharid oder einer Mischung daraus teilweise zu acetalisieren und dann das resultierende Polymer mit Verbindung (B) umzusetzen.
- 20 Ferner besteht im Rahmen der zweiten bevorzugten Ausführungsform auch die Möglichkeit, das Polymer (A) zunächst durch Umsetzung mit einer entsprechenden Menge an Verbindung (B) teilweise zu acetalisieren, dann die Hydroxyverbindung (C) zuzumischen und die resultierende Mischung mit einer weiteren Menge an Verbindung (B) umzusetzen.

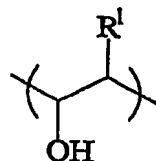
- 25 Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist das Polyvinylacetal vernetzt. Hierbei kann die Vernetzung auf an sich bekannte Weise, beispielsweise durch Umsetzung verbleibender Hydroxylgruppen im Polyvinylacetal mit Di- oder Polyaldehyden erfolgen. Besonders günstig ist es jedoch, das Polyvinylacetal durch Umsetzung und intermolekulare Veresterung

1
Austauschseite/Substitute Sheet

Patentansprüche:

1. Verfahren zur Herstellung eines Granulats enthaltend mindestens ein Polyvinylacetal, erhältlich durch Umsetzung mindestens eines Polymers (A) mit mindestens einer Verbindung (B), wobei das Polymer (A)

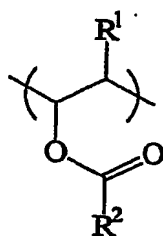
- 5 a.) 1,0 bis 100,0 Gew.-% Struktureinheiten der Formel (1)



(1)

worin R¹ Wasserstoff oder Methyl bedeutet,

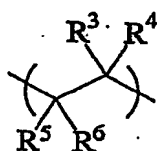
- b.) 0 bis 99,0 Gew.-% Struktureinheiten der Formel (2)



(2)

worin R² Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen darstellt,

- 10 c.) 0 bis 70,0 Gew.-% Struktureinheiten der Formel (3)

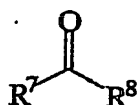


(3)

worin R³, R⁴, R⁵ und R⁶, jeweils unabhängig voneinander Reste mit einem Molekulargewicht im Bereich von 1 bis 500 g/mol sind,

jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht des Polymers (A) enthält,

wobei die Verbindung (B) der Formel (4) genügt,



(4)

Austauschseite/Substitute Sheet

worin R^7 und R^8 jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, COOH, COOM, eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine gegebenenfalls substituierte Arylgruppe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen sind und wobei M ein Metallkation oder ein gegebenenfalls alkyliertes Ammoniumkation ist, dadurch gekennzeichnet, dass man eine das Polyvinylacetal enthaltende Zusammensetzung in einem Ein- oder Zweischneckenextruder, Mehrwellenknetter, Knetter, Walzwerk und/oder einem Kalandar in den schmelzflüssigen Zustand überführt und entsprechend der gewünschten Korngröße granuliert.

- 5 2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man die Polyvinylacetal enthaltende Zusammensetzung durch Erwärmen auf 100 bis 340 °C in den schmelzflüssigen Zustand überführt.
- 15 3. Verfahren gemäß mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man das Granulat durch Heißabschlag, Kaltabschlag oder Strangextrusion herstellt.
4. Verfahren gemäß mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man während dem Überführen in den schmelzflüssigen Zustand ein Treibmittel zusetzt.
- 20 5. Verfahren gemäß mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man zumindest einen Teil der Polyvinylacetal enthaltenden Zusammensetzung über mindestens eine Seitenstromzuführung in einen Extruder überführt.
- 25 6. Verfahren gemäß mindestens einem der vorangehenden Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass man den Bereich des Extruders vom Haupteinzug bis zu einer Länge von mindestens $15 \cdot L/D$ kühlt.
7. Verfahren gemäß mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man gasförmige Verbindungen, die beim Überführen

3
Austauschseite/Substitute Sheet

der Polyvinylacetal enthaltenden Zusammensetzung in den schmelzflüssigen Zustand entsteht, aus der Zusammensetzung entfernt.

- 5 8. Granulat, erhältlich nach einem Verfahren gemäß mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, gekennzeichnet durch eine Korngrößenverteilung mit einer Einheitlichkeit d_{50}/d_{90} von größer als 0,8.
-
9. ~~Granulat nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass es eine Schüttdichte gemäß Norm 543 größer 550 g/l aufweist.~~
10. Granulat gemäß Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass es einen d_{50}/d_{90} -Wert größer 0,85 aufweist.
- 10 11. Granulat gemäß mindestens einem der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass es, bezogen auf sein Gesamtgewicht, mindestens 50,0 Gew.-% mindestens eines Polyvinylacetals enthält.
12. Granulat gemäß mindestens einem der Ansprüche 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass es weiterhin faserverstärkende Materialien enthält.
- 15 13. Granulat gemäß Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass es Kurzglasfasern, Langglasfasern, Aramidfasern und/oder Carbonfasern als faserverstärkendes Material enthält.
14. Verwendung eines Granulats nach mindestens einem der Ansprüche 8 bis 13 zur Herstellung einer Polyvinylacetal-Lösung.
- 20 15. Verwendung eines Granulats nach mindestens einem der Ansprüche 8 bis 13 zur Herstellung einer Folie.
16. Verwendung eines Granulats nach mindestens einem der Ansprüche 8 bis 13 zur Herstellung von Verbund-Sicherheitsgläsern.
- 25 17. Verwendung eines Granulats nach mindestens einem der Ansprüche 8 bis 13 als Bindemittel.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.